

FUEL CELL STACK FITTED WITH PERFECT INTERNAL  
MANIFOLD

<p>[71] Applicant: INST GAS TECHNOLOGY</p> <p>[72] Inventors: MARIANOWSKI LEONARD G; SCHORA FRANK C; PETRI RANDY J; LAWSON MARK ...</p> <p>[21] Application No.: NA</p> <p>[22] Filed: 19920702</p> <p>[43] Published: 19940610</p> <p>[30] Priority: US US1991724422A 19910702 ...</p> <p><a href="#">Go to Fulltext</a></p>	<p>[No drawing]</p>
<p>[57] Abstract:</p> <p>PURPOSE: To perfectly seal a gas passage from another gas passage, by forming on one surface, by the use of a press, a whole peripheral part and a manifold seal structure having a metallic upright seal structure.</p> <p>CONSTITUTION: A separator plate 40, electrodes 26, 27, current collecting bodies 28, 29, and an electrolyte extend as far as a cell circumferential part, and a wet seal is formed on both surfaces of the plate 40. The plate 40, the electrodes 26, 27, the current collecting bodies 28, 29, and the electrolyte tile 20 are each equipped with manifold holes 24 for fuel and manifold holes 25 for oxidant in corresponding positions. The oxidant manifold holes 25 are sealed by the oxidation manifold wet seals 45. Meanwhile, the fuel manifold holes 24 are sealed by the fuel manifold wet seals 45, and these seals 45 cause a fuel stream to flow only into an anode chamber and to flow out of the anode chamber. These seals 45 form a twofold wet seal.</p> <p>COPYRIGHT: (C)1994,JPO&amp;amp;Japio</p> <p>[52] US Class:</p> <p>[51] Int'l Class: H01M000824 H01M000806 H01M000802 H01M000812 H01M000814</p> <p>[52] ECLA: H01M000802C H01M000824B2M T01M000814M T01M030000B6C</p>	

(51)Int.Cl. <sup>3</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 1 M 8/02	S	8821-4K		
	B	8821-4K		
	R	8821-4K		

審査請求 未請求 請求項の数38(全 17 頁)

(21)出願番号	特願平4-214481	(71)出願人	591002016 インスティテュート・オブ・ガス・テクノロジー INSTITUTE OF GAS TECHNOLOGY アメリカ合衆国イリノイ州60616, シカゴ, サウス・ステート・ストリート 3424
(22)出願日	平成4年(1992)7月2日	(72)発明者	レナード・ジョー・マリアノウスキ アメリカ合衆国イリノイ州60056, マウン ト・プロスペクト, サウス・エルムハース ト・ロード 507
(31)優先権主張番号	7 2 4 4 2 2	(74)代理人	弁理士 湯浅 恭三 (外6名)
(32)優先日	1991年7月2日		
(33)優先権主張国	米国(US)		

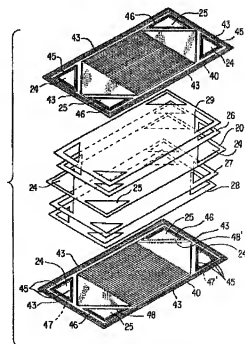
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 完全内部マニホールド付き燃料電池スタック

(57)【要約】 (修正有)

【目的】 高温熔融カーボネート燃料電池スタックの提供。

【構成】 伸長したマニホールドウエットシール構造を貫通する導管は、セパレータープレート40の一つの面のマニホールドとアノード室との第一の組の間でガスの連絡を付与し、セパレータープレートの反対面の伸長したマニホールドウエットシール構造を貫通する導管は、セパレータープレートの他の面のマニホールドとカソード室との第二の組の間でガスの連絡を付与し、反応物ガスマニホールドの伸長したマニホールド構造を貫通する導管は、散在したリホーミング室に連絡を付与し、薄い金属プレートから形成される伸長したウエットシール構造は柔軟性とレジリエンスに制限を与え、良好なシーリングを確実にする。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 複数の燃料電池単位を含んで成る燃料電池スタックにして、

各燃料電池単位はアノードとカソード；該アノードの電解質に面する面と1側面で接触し、かつ該カソードの電解質に面する面と反対側の側面で接触している電解質；及び該燃料電池単位をアノードとカソードとの間で分離するセパレーター板にして該セパレーター板のアノードに面する面と該アノードとの間にアノード室を形成し、かつ該セパレーター板のカソードに面する反対側の面と、1つの隣接する該燃料電池単位のカソードのセパレーターに面する面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り、

該アノード室は燃料ガスを供給、流出させることができるように気体連通されており、そして該カソード室はオキシゲントガスを供給、流出させることができるように気体連通されている該燃料電池スタックにおいて、該電解質と該セパレーター板が該燃料電池スタックの周辺縁まで延在しており；該セパレーター板は、それらセパレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在し、それらの周辺を完全に取囲んで、運転条件下で約1インチ幅より狭いセパレーター板/電解質ウエットシールを形成している平らにされた周辺ウエットシール構造体を有し；該電解質と該セパレーター板とは各々複数の整列された穴を有し、該セパレーター板の穴は、該電池スタックを通して延在する複数のガスマニホルドを形成するように電池の運転条件下で約1インチ幅未満のセパレーター板/電解質ウエットシールを形成している、該セパレーター板の各面上で該電解質の約1インチ未満の幅を接触させるように延在している平らにされたマニホルドウエットシール構造体を包囲されており；該延在マニホルドウエットシール構造体を通る導管が1組の該マニホルドと該アノード室との間で該セパレーター板の1つの面上において燃料ガスを流通させるようになっており、そして該延在マニホルドウエットシール構造体を通る導管が該マニホルドの第2の組と該カソード室との間で該セパレーター板の他の面上においてオキシゲントガスを流通させるようになっており；それによって燃料ガスがオキシゲントガスとを該燃料電池スタック中の該各単位燃料電池に及び該各単位燃料電池から完全に内部マニホルドするようになっており；ことを特徴とする前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタックの端板が該セパレーター板とそれらの内面上で同じに適合され、該燃料電池スタックの各端部上で半電池を形成している請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 該燃料電池スタックにその軸に沿って、2枚のセパレーター/リホーマー板で各々形成されている複数のリホーミング室が所定間隔で配置されており；1つのセパレーター/リホーマー板は該アノード室の該

セパレーター板に面する面の該アノードに面する面の形状を有し、第2のセパレーター/リホーマー板は該カソード室の該セパレーター板に面する面の該カソードに面する面の形状を有し；2枚の該セパレーター/リホーマー板はそれらの端縁領域においてリホーマー室を取り囲むように接合、封止されており；該延在マニホルドウエットシール構造体を通る複数の導管が反応ガスとスチームを第3の組の該マニホルドから該リホーマー室に通過させ；そして該延在マニホルドウエットシール構造体を通る複数の導管が水素に富む生成ガスを燃料ガス供給マニホルドに通過させ；それによって反応ガスとスチームを該燃料電池スタック中の各リホーマー単位に、また生成ガスを各リホーマー単位から完全に内部マニホルドするようになっている請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 該セパレーター板と該セパレーター/リホーマー板が厚さ約0.010〜0.050インチのプレス成型された金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 該セパレーター板と該セパレーター/リホーマー板の1つの面上の平らにされた該周辺ウエットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在周辺ウエットシールを形成するように該板のプレス成型体（s h a p i n g）を含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在周辺ウエットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体（s h a p e）を含んで成る、請求項4に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 該板の1つの面上の該延在マニホルドウエットシール構造体は該板の該1つの面上に該延在マニホルドウエットシールを形成するように該延在周辺ウエットシールを含んで成り、そして該板の他の面上に、該板の該他の面に対して固定された該延在マニホルドウエットシールを形成するプレス成型されたシート金属形状体を含んで成る、請求項5に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 該リホーマー室に約5〜約10個の隣接する燃料電池単位が群が所定間隔で配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 前記セパレーター及びセパレーター/リホーマーのプレートが、約0.010〜約0.050インチの厚さのプレスされた金属プレートである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固定された前記伸長された周辺ウエットシールを成形しているプレスされた板金の

形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 前記ウエットシールの幅が約1/4〜3/4インチである請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 前記アノードに面した側の前記セパレータープレートがニッケル及び銅より成る群から選択される1種類の金属で塗装又は被覆されている請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 前記電解質が1種類の固体イオン導体／固体オキシッドの化合物を含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 前記電解質がアルカリ金属カーボネートを含んで成る請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 前記電解質がカーボネートタイプ及びバリックスタイプの形態で前記燃料電池スタックに組み入れられている請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 前記平らにされた周辺ウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長された周辺ウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長された周辺ウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含み、前記伸長されたマニホールドウエットシール構造が、前記セパレータープレートの1つの面上において前記セパレータープレートの前記1つの面上の前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形するための前記セパレータープレートのプレスされた造形を含み、そして前記セパレータープレートの他の面上において前記セパレータープレートの前記他の面に固着された前記伸長されたマニホールドウエットシールを成形しているプレスされた板金の形状を含んで成る請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 集電装置が、前記アノード及び前記カソードのうちの少なくとも1つと前記セパレータープレートとの間にある請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 複数の燃料電池ユニットからなり、各燃料電池ユニットがアノード及びカソード、そのアノ-

ードの電解質対向面と一方の側面と接しそしてそのカソードの電解質対向面と他方の側面と接している電解質、及びアノードとカソードとの間でそれらの燃料電池ユニット同士を分離してそのセパレーター板のノード対向面とそのアノードとの間にアノード室を形成すると共にそのセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットのカソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成するセパレーター板からなり、そのアノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通しそしてそのカソード室はオキシダントガスの供給及び流出口と気体連通している；燃料電池スタックにおいて；それらの電解質、アノード、カソード及びセパレーター板は、燃料電池スタックの周縁領域まで延在しており、セパレーター板は、それらの周囲全体にわたって各面において約1インチより少ない幅の電解質と接するように延在する平らな周囲ウエットシール構造を有して、電池の運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成し、

電解質、アノード、カソード及びセパレーター板はそれぞれ複数の整列したパーホレーションを有し、セパレーター板のそれらのパーホレーションは、セパレーター板の各面において電極及び集電体の少なくとも一方の約1インチより少ない幅と接するように延在する平らなマニホールドウエットシール構造により取り囲まれて、電池運転条件下で約1インチより少ない幅の電解質／電解質ウエットシールを形成して、電池スタックを貫いて延在する複数のマニホールド、その延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の一方の面上の一组のマニホールドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及びその延在マニホールドウエットシール構造を貫通してセパレーター板の他方の面上の別の組のマニホールドとカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成させ、それにより燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池へのならびにそれからの燃料及びオキシダントガスの完全な内部マニホールドシステムを与えることからの改良。

【請求項19】 請求項18記載の燃料電池スタックにおいて、電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている燃料電池スタック。

【請求項20】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、燃料電池スタックは、その軸に沿って、それぞれが二つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーミング室を散在させており、それらのセパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の二つに直面するセパレーター板のアノード対向面の形状を有し、そしてセパレーター／リホーマー板の他方がカソード室の一つに直面するセパレーター板のカソード対向面の形状を有し、上記二つのセパレーター／リホーマー板

はそれらの縁部において密封結合してリホーム室を封入しており、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は第3番目の組のマニホールドからリホーム室への反応ガス及びスチームの流通を与え、延在マニホールドウエットシール構造を貫いている導管は燃料ガス供給マニホールドへの強化水素生成ガスの流通を与え、それにより燃料電池スタックの各リホームユニットへの反応剤ガス及び空気ならびに各リホームユニットからの生成ガスの完全な内部マニホールドシステムを与える燃料電池スタック。

【請求項21】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板及びセパレーター／リホーム板は約0.010〜約0.050インチ厚のプレス加工金属板である燃料電池スタック。

【請求項22】 請求項20記載の燃料電池スタックにおいて、セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造は、その板のその一方の面上に前記延在周囲ウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そしてその板の他の面においては該板のその他の面に固着された延在周囲ウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項23】 請求項22記載の燃料電池スタックにおいて、該板の一方の面上に延在するマニホールドウエットシール構造は、該板の該一方の面上に前記延在マニホールドウエットシールを形成するような該板のプレス加工成形からなり、そして該板の他の面においては該板の他の面に固着された延在マニホールドウエットシールを形成するプレス加工板金形状からなる燃料電池スタック。

【請求項24】 請求項19記載の燃料電池スタックにおいて、該リホーム室は、約5〜約10の隣接燃料電池ユニットからなる群の間に散在されている燃料電池スタック。

【請求項25】 セパレータープレートが約0.010〜約0.050インチの厚さの圧延金属プレートである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項26】 セパレータープレートの1つの面上の延長したマニホールドウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する約0.010〜約0.050インチの厚さの加圧シート金属成型物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項27】 ウエットシールの巾が約1/4〜約3/4インチである請求項18の燃料電池スタック。

【請求項28】 上記アノードに面した側のセパレータ

ープレートがニッケウオおよび銅からなる群より選択された金属で被覆または被着された請求項18の燃料電池スタック。

【請求項29】 電極が固体イオン導体／固体酸化化合物からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項30】 電解質がアルカリ金属カルボン酸塩からなる請求項18の燃料電池スタック。

【請求項31】 電解質がカーボネートテープおよびマトリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている請求項30の燃料電池スタック。

【請求項32】 セパレータープレートの1つの面上の偏平な周辺のウエットシール構造が、該セパレータープレートの1つの面上では、該セパレータープレートの上記1つの面上に該延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、該セパレータープレートの他の面上では、該プレートは該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長した周辺のマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなり、該セパレータープレートの上記1つの面上の該延長したマニホールドウエットシール構造は、該セパレータープレートの1つの面上では、該延長したマニホールドウエットシールを形成するための該セパレータープレートの加圧成型物からなり、および該セパレータープレートの他の面上では、該セパレーターの上記他の面に固定された上記延長したマニホールドウエットシールを形成する加圧シート金属成型物からなる請求項30の燃料電池スタック。

【請求項33】 上記集電装置が燃料電池スタックの周辺縁部にまで延びている請求項18の燃料電池スタック。

【請求項34】 アノード、セパレータープレート、およびカソードからなる燃料電池ユニット用サブアセンブリであって、

該燃料電池ユニットは上記アノード、カソードおよび燃料電池スタックの縁部に延びるセパレータープレートを有し、該セパレータープレートは、約1インチ未満の巾の、完全にそれらの周辺部全体の各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造を有し、上記あの一ど、上記カソード、および上記セパレータープレートは各々多数の整列した穿孔を有し、該セパレータープレートの穿孔は約1インチ未満の巾の、完全に該穿孔の周囲のセパレータープレートの各面から延びる偏平な周辺のウエットシール構造によって囲まれており、燃料ガスは上記延長したマニホールドウエットシール構造を通して上記マニホールドと上記セパレータープレートの1つの面上のアノードチャンバーとの間に流通させる導管および酸素ガスを上記延長したマニホールドウエットシール構造を通してもう1組の上記マニホールドと上記セパレータープレートの他の面上のカソードチャンバーとの間に流通させる導管を有することによって、各シール部分で封止接

合された上記燃料電池スタック、上記アノード、上記セパレータプレートおよび上記カソードにおける各ユニット燃料電池に、燃料ガスと酸素ガスを流入させかつ流出させることができるようにしたサブアセンブリー。

【請求項 35】 封止接合が溶接である請求項 34 のサブアセンブリー。

【請求項 36】 セパレータプレートとウェットシール構造がウェットシール構造の偏平部分において厚さ約 0.010〜約 0.050 インチであり、市約 1/4〜約 3/4 インチである請求項 34 のサブアセンブリー。

【請求項 37】 集電装置が上記アノードか上記カソードの少なくとも一方と上記セパレータプレートとの間にある請求項 34 のサブアセンブリー。

【請求項 38】 集電装置が燃料電池スタックの縁部に延びている請求項 37 のサブアセンブリー。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は内部マニホールドを有する燃料電池スタックおよび内部マニホールドを有し且つ内部リフォームされた燃料電池スタックに関し、そして特にそのためのアノード/電流コレクター/セパレータプレート/電流コレクター/カソードからなるサブアセンブリーに関し、該サブアセンブリーは、電解質と組み合わせた時該電解質と電極との間にウェットシールを有するものである。このサブアセンブリーは、アセンブリーに対する安全と長期安定性を提供し、そしてセパレータプレートの設計は複数の内部リホーミングチャンバーを有することを可能とし、該チャンバーはアノードチャンバーと分離されてスタックの高さ方向に沿って配置されている。本発明は特に溶融炭酸塩および固形コンダクター/固形化物燃料電池に適用できる。

【0002】

【従来の技術】 一般に、燃料電池電気発生ユニットは、不活性なもしくは二極性の電気伝導性鉄系金属セパレータプレートによって分離された各電池の複数のスタックからなっている。各電池は互いにサンドイッチ状に挟みあって固定された一つのスタックユニットをなして、所望の燃料電池エネルギー発生装置を形成する。各電池は一般にアノード及びカソード電極、共通の電解質タイル、および燃料と酸化ガスの供給源を含んでいる。燃料ガスおよび酸化ガスは双方とも、マニホールドを通して、セパレータプレートと電解質タイルとの間の夫々の反応成分チャンバーに導入される。電解質と他の電池成分との接触領域は、燃料ガスと酸化ガスの分離を維持しそしてガス漏れを防止および/または最小限にするため、ウェットシールとして知られている。初期の燃料電池の欠陥に関与する主な要因は、ウェットシール領域の腐食と疲労である。この欠陥は、高温の腐食性電解質の接触および電池の熱サイクルの間の温度の大幅な変動に起因する高度な熱ストレスにより加速され、結晶内およ

び結晶間クラッキングによる構造の脆弱化を招来する。このような欠陥は望ましくならぬ燃料ガスおよび/または酸化ガスの混合および系外へのガス漏れを引き起こし、意図する酸化還元反応を阻害して、電池の電流発生の下および最終的停止を生じる。約 500 ないし 700°C の範囲の燃料電池運転条件においては、溶融炭酸塩電解質は、その強度のために燃料電池のハンジングとしておよびセパレータプレートとして必要鉄系金属に対して非常に腐食性である。溶融炭酸塩燃料電池スタックの高温運転は、ウェットシール領域における腐食と熱ストレスの問題を増大し、このことは隣りあう材料の熱膨張係数が異なる場合に特に顕著である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、組み立てたスタックの各電池へ出入りする燃料ガスおよび酸化ガスのための、電池成分の設計により組み立ての容易さ、長期耐久性および燃料電池運転の安定性を提供する様式で、完全に内部化したマニホールドを提供する。本発明はまた、リホーミング触媒の疲労なしに行なえる炭化水素含有燃料の内部電池リホーミングのための、独立したリホーミングチャンバーのための内部マニホールドを提供することである。リホーミング用メタンが酸化炭素と水素に変化する吸熱反応が、電池スタック内で有利に行われる。

【従来の技術】

【0004】 商業的に実行できるカーボネート燃料電池のスタックは、各々 8 フィート四方の平面積を有する約 600 以上の電池を含んでい。このような個々の電池のスタックにおいて、分離用板は、各々が 1 セットの分離用板の間に入れられた燃料及びオキシダントから個々の電池を分離し、燃料は分離用板の 1 面と電解質マトリックスのアノード側との間に入れられ、オキシダントは分離用板の他方の面と二次電解質マトリックスのカソード側との間に入れられる。

【0005】 燃料電池の開発において強調されてきたことは、燃料電池スタックから物理的に分離可能なチャンネルマニホールドを使用することにより、燃料とオキシダントガスを外部マニホールドデングすることである。しかしながら、各電池の入力及び出力はそれぞれの入力マニホールド及び出力マニホールドに開かれていなければならない。入力マニホールド及び出力マニホールドは電池スタックの外面上にクランプされなければならない。電気的なショートを避けるために、金属マニホールドと電池スタックとの間を絶縁しなければならない。外部マニホーディングは、電池スタックの電位傾度に沿ってガスケット内でカーボネートの吸入排出を防止している間、マニホールド/マニホールドガスケット/燃料電池スタックの界面において十分なガスシールを維持するために重大な問題が存在する。電池スタックから金属マニホールドを絶縁するためのさ

さまざまな組み合わせが使用されてきたが、高温熔融カーボネートの燃料電池操作条件下においてはカーボネートが浸透できないにもかかわらず、ガス密封のスライディングシールを提供すること及び電気的に絶縁することは困難であり、満足の行く解決は見いだせなかった。マニフォルディング及びスライディングの問題は、多数の電池及び広い平面積を電池スタックに使用する場合は、より厳密になる。大多数の電池を使用する場合は、スタックの高さに沿ったシール領域内でカーボネートを動かす電位が増加し、そして電池の平面積が増加する場合は、各成分の線状許容量及び各成分の側面配列は、マニフォルド/マニフォルドガスケット/電池スタック間の表面のシールを維持するのが極端に困難になる。

【0006】600の電池を含むセルスタックス (cell stacks) は約10フィート (3.048メートル) もの高さになり得るので、外部マニフォルド (external manifolds) の剛性 (stiffness) が要求されること及びマニフォルドをセルスタック (cell stack) 上に押圧するのに必要な締付力の使用といった重大な問題が生じる。セルアセンブリ (cell assembly) とセル操作条件との間の熱膨張、示差熱膨張 (differential thermal expansion) 、及びマニフォルドに使用される材料の必要な強度のために、精密許容差及び非常に困難な工学的問題点が生じる。

【0007】従来は、個々の熔融カーボネート燃料電池は、分離板 (separator plate) の外面周囲にスペーサーストリップ (spacer strip) を設けてウエットシールを形成するとともに取入れ及び排出マニフォルドを形成していた。高温燃料電池のウエットシール部分の環境における様々なシール手度は、以下の米国特許に開示されている。米国特許第4,579,788号はウエットシールストリップを粉末冶金技術を利用して製作することを教示している。米国特許第3,723,186号は、電解質自体がその周囲の領域にある不活性材料から成り当該電解質とフレーム若しくはハウジングとの間で不活性周辺シールを作っていることを教示している。米国特許第4,160,067号は、ウエットシール部分における燃料電池のハウジング若しくはセパレーター上への不活性材料の蒸着 (deposition) 、又はこのいずれかに含まれた不活性材料の蒸着を教示している。米国特許第3,867,206号は、電解質飽和マトリックスと電極の電解質飽和周辺縁端との間におけるウエットシールを教示している。米国特許第4,761,348号は、ガス透過性材料の周辺レールによってガスシール機能を付与し、オキシダント及び燃料ガスからアノードとカソードをそれぞれ隔離することを教示している。米国特許第4,329,403号は、電極から内部電解質領域への移動に

際し、熱膨張係数がより漸進的に変化する電解質組成物を教示している。米国特許第3,514,333号は、薄いアルミニウムのシール用ガスケットを用いた高温燃料電池におけるアルカリ金属カーボネートのハウジングを教示している。上記の特許をいずれも、燃料電池スタックにおける内部燃料とオキシダントの間のシールを扱ってはいない。

【0008】リン酸燃料電池 (約150℃ないし220℃で作動する) のガスシールを、電池の構成要素の多孔質材料周囲の細孔の炭化ケイ素及び/又は窒化ケイ素でふさぐことによって行うことが米国特許第4,781,727号に、また支持板縁端 (substrate plate edge) に透き通る空間 (interstitial spaces) を設けることによって行うことが米国特許第4,786,568号および第4,824,739号に、それぞれ教示されている。燃料のみの内部マニフォルディング (internal manifolding) について低温電解槽 (low temperature electrolytic cells) において直面するシール及び腐食の問題の解決、例えば、米国特許第4,259,389号に教示されている顆粒状不活性材料のポリテトラフルオロエチレンをもちいた接着、米国特許第3,012,086号に教示されているポリエチレンのガスケット、及び米国特許第3,589,941号に教示されている“O”リングシール等は、高温熔融カーボネート燃料電池に適しているとはいえない。

【0009】米国特許第4,510,213号は、電池ユニットの活性部分 (active portion) と取り囲んでいるトランジションフレーム (transition frame) によって個々の電池のガスコンパートメント (gas compartment) に燃料とオキシダントマニフォルドを与え、当該マニフォルドはセパレーターも当該電池の電解質タイル (electrolyte tile) も貫通しないことを教示している。このトランジションフレームは隣接する電池間で複雑な絶縁を必要とし、いくつかの独立した複雑な部分から成っている。米国特許第4,708,916号は、熔融カーボネート燃料電池に関する燃料の内部マニフォルディング及びオキシダントの外部マニフォルディングを教示している。上記熔融カーボネート燃料電池においては、何組かの燃料マニフォルドが個々の電池の中央部分及び両不満にある電解質とセパレーターのみではなく電極をも貫通して、短縮された燃料用流路を形成している。末端の燃料マニフォルドはセパレータープレート (edge wall area) にあり、一方、中央部の燃料マニフォルドは厚い中央部領域を貫通しており、カーボネートで含浸されたシール用テーパー又は独立した円筒状コンジットインサート (conduit insert) はカソードを貫通して延

長されている。

【0010】内部のマニホールド化は、電池の対向縁に沿った複数のマニホールド孔を用いたことにより燃料ガスとオキシダントガスとに並流又は向流を与えるように意図されていた。燃料用のこれらマニホールド孔は反対縁に沿った拡大された周辺ウェットシール領域中に配置されていたが、マニホールドは電解放の外部構造が複雑であり、少なくとも1つの電極を通過する。しかしながら、隣接するマニホールド孔は燃料用及びオキシダント用には使用され、これは短いウェットシートを横切る短い通路、ガスの漏出を与え、更に必然的に拡大された周辺シール領域により電池の活性領域の好ましくない減少を与える。例えば、米国特許4,769,298を参照されたい。

【0011】同様に、内部マニホールド化の従来の試みでは、電池の4つの縁のそれぞれに、拡大された周辺ウェットシール領域に沿って複数のマニホールド孔を用いた。しかしながら、前述の様に隣接する燃料及びオキシダント用マニホールド間の短い通路、同様な複雑な構造及び孔により、ガスの漏出を生じ、更に電池の活性領域を減じた。

【0012】燃料としてガス化生成物を用いた場合、炭化水素成分を改質し、燃料電池スタック内の内部改質による燃料内の水素含量を増加することが好ましい。しかしながら、従来の改質触媒は、その活性サイトが炭酸塩の膜によって被覆されるため、熔融炭酸塩電解質により失活することが知られている。("Development of Internal Reforming Catalysts for the Direct Fuel Cell", Michael Tarjan, Lawrence Paetsch, Randolph Bernard, Hossin Ghazel-Ayagh, 1985, Fuel Cell Seminar, Tucson, Ariz, May 19-22, 1985, pp. 177-181, 参照)。

【0013】更に、熔融炭酸塩燃料電池の長期の耐久性を損なう別の問題点は、熔融炭酸塩電解質による多孔性アノード構造の変形、流体集積体、分極板等のようなアノード側のハードウェアの腐食、及びそれによる電解質の損失、及びアノードとカソードの溶解による多孔性アノードを通るガスのクロスオーバー、電解質の損失を生じることである。燃料電池に長期間の安定性及び耐久性を与えるために、これらの1または2以上の問題点を解決するための多くの試みがなされてきた。

【0014】燃料電池のアノード室への燃料供給流の水素含量を増加させることは、幾つかの特許に示されている。米国特許3,266,938には複数の高温燃料電池を連続的に配置し、それによって、連続配置中の第1の電池のアノード室からの排ガスを電池の外部で吸熱反応により接触改質して追加の水素を生じ、次いで配列中の第2のアノード室に通す。第2の燃料電池のアノード室の排ガスは電池の外部で接触熱交換反応に付し、水素を生じ、配置中の第3の燃料電池のアノード室に供される。改質及び転換反応は燃料電池の外部で行わ

れ、燃料電池のアノード室への供給燃料により高含量の水素を与える。米国特許4,522,894では、接触酸化及び水蒸気改質により、液状炭化水素供給物の水素含量を増加することが教示されている。ここで、酸化によって生じる熱エネルギーは燃料電池外での改質に使用されており、燃料電池のアノード室への燃料供給流中に高い水素含量を与える。

【0015】米国特許3,488,226では、液状炭化水素の低温、低圧水蒸気改質により、熔融炭酸塩燃料電池のアノード室用の供給燃料中に水素を増加させることが教示されている。ここで、改質は燃料電池の外部で行われ、燃料電池で生じる熱の熱処理機能として作用する。1つの具体例としては、改質触媒は燃料電池のアノード室内に置くこともできる。また、たの具体例では、燃料電池からの廃熱は水素発生のための吸熱改質反応を維持するのに直接使用する。米国特許4,702,973では、熔融炭酸塩燃料電池用の2室アノード構造が示されている。ここで、熔融炭酸塩電解質は、水素イオン透過性で電解質不透過性の金属箔によって、汚染された燃料ガス及び改質触媒から隔離される。

【0016】  
【発明の要約】本発明は、完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供し、特に、高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に達する。本発明の完全に内部的にマニホールドされた燃料電池は、平面構成要素を有する任意の電池、特に例えば解融カーボネイトおよび固体導体/固体炭化物燃料電池のような高温燃料電池に適する。一般的には複数の燃料電池単位の長方形燃料電池スタックが作られ、各燃料電池単位はアノードおよびカソード、アノードの片側に接しおよびカソードの反対側に接する電解質、ならびにおよびその電池のアノードと隣接する電池のカソードとの間の電池単位を分離して分極板の片側とアノードとの間にアノード容器を形成し、および分極板の反対側とカソードとの間のカソード容器を分離する分極板から成る。この燃料電池単位はスタックされ、分極板と同様な内部構造を有する末端板が提供され各端部に半分の電池を形成し、燃料電池スタックに強固な構造を与えるためにクランプ止めされる。本発明の燃料電池スタックでは、電解質、電極、集電装置および分極板は約同様の外寸を有することができる。燃料電池スタックの端の領域に伸びることができる。分極板は、平坦な末端シール構造を有し、これは分極板の平面から伸びて各分極板のフェイリス上の集電装置および/または電極に、それらの末端の回りに完全に接触して末端シールを形成する。アノード、アノード集電装置、分極板、カソード集電装置およびカソードのサブアセンブリは、制御された条件で組み立てられることができ、つぎにこのようなサブアセンブリは電池スタックを作るときに電解質および電解質マトリックス部分と組合わされる。



【0017】本発明はまた、燃料電池スタック内に炭化水素性 (hydrocarbonaceous) 燃料を再構成するための分離された容器を有する完全に内部的にマニホールドされた燃料電池スタックを提供でき、付加的な水素燃料を提供し吸熱再構成反応のための熱エネルギーを引き出し、これによって燃料電池の発熱電気化学反応による加熱により必要とされる燃料電池スタックの所望する冷却を提供することができる。本発明は特に高温熔融カーボネート燃料電池スタックの使用に適し、電解質からの再構成化触媒の分離を提供し、これは熔融アルカリカーボネートの場合には容易に触媒の力を無くす。

【0018】電解質、電極、集電装置およびセパレータ・プレートが、一直線に並ぶ多数のバーホレーション (穿孔) を所望の位置に有している。各セパレータ・プレートの穿孔は扁平なマニホールド・シール構造によって閉まれており、そしてそれは、セパレータ・プレートの面から該セパレータ・プレートの各面上の集電装置および/または電極と接触するまで延びていて、セパレータ・プレート/集電装置および/または電極シールを形成し、それが各穿孔を囲んで各穿孔を通してガス・マニホールドを形成し、そして電極スタックを通して延びている。延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール (穴) は、燃料マニホールドとセパレータ・プレートとの一面にあるアノード室との間にガス整流を供給し、そして、延びたマニホールド・シール構造を通じて導管またはホール (穴) は、オキシゲント・マニホールドとセパレータ・プレートとの反対面上にあるカソード室との間のガス伝達を可能にする。この構造により、燃料電池スタックにおける単位燃料電池の各々へ、および各々から、燃料およびオキシゲント・ガスの内部マニホーディングが十分与えられる。同様に、炭化水素反応ガスおよび蒸気は燃料電池スタックを通じて散在するリホーミング室へ供給されるだろうし、そして、水素濃縮改質生成ガスが各リホーミング室から燃料マニホールドへ送られ、下流のアノード室へ供給される。

【0019】スタック末端プレートは、それらの内面上のセパレータ・プレートへ同様に設置され、該燃料電池スタックの組の各々に供給し排出する手段が備えられている。末端のプレートの接続部分 (コネクション) におけるマニホールドの適当な組へ、および組から、燃料ガス、オキシゲント・ガスおよび炭化水素反応ガスを供給し排出する外部手段は、いかなる従来技術手段によって備えてもよい。ここで「マニホールドの組」というのは、1またはそれ以上の燃料入口を形成する第1の組、1またはそれ以上の使用済の燃料排出口である第2の組、1またはそれ以上のオキシゲント入口である第3の組、1またはそれ以上の使用済のオキシゲント排出口である第4の組、そして1またはそれ以上の反応ガス出口の第5の組をいう。セパレータ・プレート、集

電装置、電極および電解質を通じて形成されている穿孔は、丸、正方形、長方形、三角形、または他のどんな所望の形や大きさであってもよい。そのような穿孔の各々は単一の穿孔として述べられているが、所望のガス分配を供給するには困難を生ずるだろう。電極の活性領域の向こう側に所望のガス流量とパターンを供給するために、所望に応じて、電極構成要素を通して、任意の数のマニホールドを備えてよい。本発明では、少なくとも約0.25インチ離れた隣合うマニホールドのエッジ (縁) を有する各マニホールドで囲まれたセパレータ・プレートと集電装置および/または電極との間に直接シールを備えることが重要である。本発明はまた、セパレータ・プレートと集電装置および/または内部マニホールドの領域の外部にある電極との間に直接、連続する周辺シールを備える。

【0020】一つの好ましい実施例においては、本発明に係る分離板はプレスした薄い金属板であって、燃料電池の全作用領域に被覆の部分および/又はくぼみが設けられていて、一つの面上に全周縁部と、分離板の反対側の面に溶接された薄い金属の直立したシール構造を有するマニホールドシール構造とが、プレスによって形成されており、それによって、分離板と、分離板の対向する両面上のコネクタまたは電極との間に、全周縁部とマニホールドシールが設けられている。例えば棒状または帯板状の、粉末冶金法および類似の方法によって形成される延長したシール領域を設けるために、どのような構造を用いてもよい。一方の側にアノード電流コネクタおよび/又はアノードがあり、反対側にカソード電流コネクタおよび/又はカソードがある分離板の半組み立て品は、マニホールドと周縁のシール構造の領域内で金属製の要素を溶接またはろう接することによって製造することができる。

【0021】好ましい実施例においては、マニホールドとアノード室とカソード室さらにはリフォーム室の間のガスの流通を与えるための、延長したマニホールドシール構造を通る導通路または穴は、適当な波状にした金属によって形成される開口であるか、あるいは薄板金属または棒状構造を通る穴であってよい。

【0022】本発明は一つのガス導通路を隣接するガス導通路から確実にシールするものであり、それによって高温および腐食性の燃料電池、例えば溶接炭酸塩燃料電池スタックからの、完全に内部でマニホールドしたガスの供給と除去を行うための有効な手段を与える。また本発明の構造を用いることによって、マルチ電池スタックに炭酸塩を供給するための有効で様々な手段も得られる。

【0023】本発明の構造はまた、燃料電池スタックの中に散在する完全内部マニホールドリフォーム室も与えるものであり、それによってアノード室に商品質化した水素燃料を供給する炭酸水素燃料ガスリフォーム室

れ、また一方では、リフォーム反応を進め、燃料電池スタックを冷却するための電気化学的に生成された熱エネルギーを有効に利用するものである。

【0024】本発明は燃料電池要素、特に分離板の半組み立て品、アノード電流コレクタおよび／又はアノード、およびカソード電流コレクタおよび／又はカソードの、大量生産可能な形状を与え、また制御された条件下で実質的な費用で製作できる。本発明の半組み立て品の使用によつて、燃料電池スタックの組み立てが容易になり、また様々なサイズの燃料電池スタックのモジュール化が可能となる。

【0025】本発明はまた、内部リフォームを伴う完全内部マニホールド燃料電池スタックを使用する、特に溶融アルカリ金属炭酸塩燃料電池スタックを使用する電気生成方法を与えるものである。

【0026】本発明の好ましい実施態様においては、燃料とオキシダントは完全内部マニホールド燃料電池スタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/505,293号に記載されるように流す。同様に、燃料、オキシダント、反応ガスおよび蒸気を完全内部マニホールドと内部改造燃料電池スタック中を、すでに許可されている米国特許出願第07/517,227号に記載されるように流す。これらの米国特許出願全体は本明細書の一部として引用する。また、これらの先行出願には、所望の完全内部燃料、オキシダント、反応物と蒸気および排出マニホールドと運動させて、一般に防漏体性のアノード、カソードおよび改造チャンバーを提供する電解液と接触するように伸長する周辺ウェットシール構造と直立マニホールドウェットシール構造によつて形成される電解液とセパレータプレート間のウェットシールしたセパレータプレートの中くぼみに取り付けた集電部と電極からなる発明の実施態様がより詳細に記載されている。この出願により詳細に記載されている態様は、セパレータプレートの周辺部に伸長する集電部と電極からなっており、これによつて製造許容範囲が広がり、セパレータプレート、集電部と電極のサブアセンブリーをより実質的なものになっている。この出願により詳細に記載されている態様においては、ウェットシールは、周辺シール部と各内部マニホールドを囲むシール部分の、電解液と集電部および／または電極間にある。

【0027】本発明は、完全内部マニホールド燃料電池スタックに関するものである。好ましい実施態様においては、電解液タイル、電極、集電部およびセパレータプレートはそれぞれ配列したマニホールドダクトによつて透過されている。これらの要素は皆ほぼ同じ大きさの、セル周辺かその近辺にまで伸長する集電部と電極である。これらの態様によつて、セパレータプレートのくぼみに電極と集電部を密にフィットさせることが要求される強い許容性の問題を解決している。これらの態様はまた、アノード／集電部、セパレータプレート／

集電部／カソード集電部ユニットのサブアセンブリーをより簡単かつ実用的にしている。これらの要素のプレアセンブリーは、あらかじめ構成したサブアセンブリーと電解液へのスタック要素の数をかなり少なくすることによつて燃料セルスタックのアセンブリーをかなり機能的にしている。本発明では、セパレータプレートの一面から伸長する圧縮シール部とセパレータプレートの反対面から伸長する薄いシートフォームを有する薄いシートセパレータプレートを用いて、マニホールドと周辺シール部を形成するのが好ましい。この薄いシートシール部はプレキシビリティとレジリエンスを制限して密閉するものである。

【0028】本発明の燃料セルスタックは、本明細書の一部として引用される上記の先行出願により詳細に記載されるように、燃料とオキシダントガスをセルスタックの十分に内部に流す。先行出願に記載されるように、セルセパレータプレートとともにセルのエッジに伸長する電極の角の部分にマニホールドホールを設けてもよい。電極の周辺部の回りにあるそれぞれの面上にある通常のウェットシールを形成する各面上のセパレータプレートと電解液間の接触によつて、液体を封じ込めている。マニホールドホールとアノードとカソード区画の間の液体流通を可能にする所望のオフパニングを通して、電解液とセパレータプレートの間の通常のウェットシールでマニホールドホールをシーリングしながら所望のガス流通を行ってもよい。この出願により詳細に記載される態様は、セパレータプレートの周辺部に伸長する集電部と電極を有し、集電部と電極のマニホールドホールをマッチングさせることを要し、従来法として記載される態様におけるように電解液とセパレータプレートとの間ではなくて電解液と電極との間のウェットシールを行う。

【0029】分離プレート、電解液タイル、電極及び電流コレクターにおける調和マニホールド孔は、ガスの供給及び排出用の燃料電池スタックの全高さにわたって連続しているマニホールド導管を形成する。本発明は、燃料電池スタック中の全電池へ内部的に伸びているマニホールド導管が単一の外部開口から供給されるものであり、一方従来の外部的にマニホールドされた燃料電池スタックは、各独立した燃料電池へ向かって又はそれからの外部開口を必要としていた。ガスは、1つの半電池として動作するエンドプレートを通して燃料電池スタックへ供給され、そして他の半電池として動作する同様のエンドプレートを通して排出される。

【0030】流体が燃料電池スタックへ供給され、又それから取り出される方法は、広範囲のバリエーションにおいて行われる。ガスシーリングは、各個の電池内及び燃料電池スタックに散在するリフォーマーミッドの望ましい位置にガスを導入するのに適するように、分離プレート周辺と各ガスマニホールド領域との両方において、

電解液ダイヤルと電極との間のシーリングにより通常の方法で、達成される。ウェットシールは、分離プレートの両側上にある類似の直立シール構造物によって、これらの領域に形成される。

【0031】各先の図1に示されるように、電解液20及び分離プレート40は電池の外側端まで延びて、ウェットシール領域23における周囲のあたりでお互いにシールされている。独立した熔融炭酸塩燃料電池ユニットはアノード26とともに示されており、そのアノードは分離プレート40の一面から離れており、矢印38によって示されているように燃料マニホールド孔24により供給されるアノード室を形成する。分離プレート40の他面には、カソード27が分離プレート40から離れて設けられ、矢印39により示されるようにオキシゲンマニホールド孔25と連結してカソード室を形成する。電解液20及び分離プレート40は、周辺ウェットシール領域23を形成する電池の外端まで延び、その領域が電解液と流体封じ込み用の分離プレートとの間の周辺ウェットシールを形成する。燃料マニホールドウェットシール領域45及びオキシゲンウェットシール領域46は、電解液/分離プレートウェットシールによりマニホールドシーリングを形成し、分離プレート40の反対側にあるアノード及びカソード室への流体の望ましい導入を行う。如何なる追加のガスケットもシーリングのために使用されず、又この電池ユニットは炭酸塩テープも包含する広範囲な種類の炭酸塩添加技術に適応することができる。

【0032】本願の図1（正確な縮尺で書かれていない）は、本発明の一つの態様に従った周辺シール部分の詳細を示すものであり、薄いシーセパレーター板40は、穿孔30を有するカソード27の集電装置28に隣接して波形の一面上にピークをも波形で示されており、該電池のカソード面上にカソード集電装置28に隣接して置かれている。平らな薄いシートのセパレーター板周辺シール部分44をもつように形成されている。薄い金属トリップ材から形成されたセパレーター板シールストリップ41は、溶接点42で溶接されているが、もしくはセパレーター板40のアノードに付設させて、該電池のアノード側に穿孔31を有するアノード26の集電装置26に隣接して設置されている平らなセパレーター板シールストリップ周辺シール部分43を与える。

【0033】セパレーター板及びシールストリップの位置は、逆にされても良く、セパレーターシールストリップ周辺部分43とセパレーターシール部分44の間隔は、個々の電池が必要とする間隔に合うように形成されることは、極めて明らかである。該電池の構成部材の各々は、ほぼ該電池の周辺に伸びているが、セパレーター板の立上り部分により形成されるウェットシール部分において電解液と電極及び/又は集電装置との間のウェットシールを形成するシール部分43と44の十分な重複

がある限り、ここでは寸法は臨界的ではない。類似のウェットシールは、セパレーター板の各々の側で類似の立上りシール構造により、各々のマニホールドの周囲に形成される。電池操作条件下で電極を通る電解液の漏れを防止するために、ウェットシールの部分において、多孔性電極は、ろう付材の如き、高融点材料で充填される。電池スタックが共にしっかりと締められる時、セパレーター板の周辺周囲と内部マニホールドの各々の周囲のセパレーター板の両面に、立上りウェットシール部分からの形成により、ウェットシールが圧入される。

【0034】我々は、広いウェットシール部分機能よりも、狭いウェットシール部分機能がよいことを見出した。立上りウェットシール部分は、セパレーター板と同じ薄い材料、約0.010-0.050インチ、好ましくは約0.015-0.025インチで構成されることが望ましい。又、漏れの原因となるたるみやがりがやすさを避けるために、約1インチより小さい幅に限定することを見出した。立上りウェットシール構造物の幅は、好ましくは約0.25-0.75インチで、内部ブリッジングや支持の必要性をなくせる。さらに、我々は、幅1インチ以下のウェットシールは、電解質マトリックスにおける良好な炭酸塩電解質保持をさせる電池昇温間、グリーン電解質マトリックステープから有機質バインダーの、必要な十分な除去を与えることを見出した。約1インチを超えるウェットシール幅は、電池操作間に漏れがちなウェットシールに導く、残留する炭酸塩材料や少量の炭酸塩電解質が存在することになる。再び、追付のガスケットはシールのために用いられることはなく、又該電池ユニットは炭酸塩テープの使用を含め、追加の炭酸塩技術の応用に変化に適応できる。

【0035】炭酸塩テープを用いるときには、炭酸塩テープ及び電解質マトリックスは、セルエッジに向けて伸びている。そして、インターフェースペーシングは、炭酸塩テープが溶融すると、該炭酸塩テープの厚さに比例して減少するが、シーリングとセルコンポーネント全体の組み立ては常時維持される。炭酸塩テープが溶融する前にセルをヒートアップする間、マニホールドホール24及び25のそれぞれのまわりは、シール状態が維持される。この理由は、炭酸塩テープ及び電解質マトリックス、例えば  $LiAlO_2$  が、隣接するシール面に向かっており、しかも、ゴム状のバインダーを含有しているからである。バインダーが燃え尽きる間、ガスの流れは維持され、そしてシールが得られる。なお、バインダーが燃え尽きるのは、炭酸塩が溶融する前である。バインダーが燃え尽きて、セルの温度が上昇して炭酸塩の融点になったとき、溶融炭酸塩は多孔質  $LiAlO_2$  テープ及び電極に吸収される。内部セルスペーシングは、炭酸塩テープが溶融してその間隔が減少するが、室温から動作温度である約650℃までシールは保持される。シール部分にある薄い金属シートが有する、制限された柔軟性

と振りによって、セルのシールは更に確実となる。

【0036】図2は、本発明の一態様に従う溶融炭酸塩燃料電池スタックの燃料電池ユニットの斜視分解図である。図2において、40はセパレータプレート、27はカソード、28はカソード集電体、20は電解質、26はアノード、29はアノード集電体である。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20は、セルの周辺部分にまで伸びており、セパレータプレート40の両面においてウエットシールを形成する。つまり、電解質20とカソード27及び/又は集電体28との間、そして、電解質20と、アノード26及び集電体29との間において、ウエットの周縁部全体にわたってウエットシール43が形成される。周縁部のウエットシール構造43は、セパレータプレート40の面から上方及び下方に伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面は、集電体及び/又は電極の周縁部と接することになる。セパレータプレート40、電極26及び27、集電体28及び29、並びに電解質20には、それぞれ、対応する位置に燃料用マニホールドホール24とオキシダント用マニホールドホール25が設けられている。それぞれのマニホールドホールは、一方が供給用のホールであり、他方が排気用のホールである。図2に示すように、マニホールドホールは、好ましくは三角形をしている。これは薄いシートから容易にマニホールドシール領域を形成できるからである。しかしながら、マニホールドホールは、円形や矩形その他の形状でもよい。図2に示すマニホールドホールは一つの開口部となっていて、例えば、セルの反応チャンパー中を流れるガス流を制御するために開口部にバリエーションを設けてもよい。燃料用マニホールドウエットシール領域45及びオキシダント用マニホールドウエットシール領域46は、セパレータプレート40の上方及び下方に向かって伸びている。その結果、セパレータプレート40の両面において、集電体及び/又は電極と接することになり、電解質とそれに隣接する集電体及び/又は電極との間でウエットシールを形成する。なお、周縁部のウエットシールの場合と同様に、電解質とそれに隣接する集電体及び/又は電極はガス導管を形成する。

【0037】図2に一番よく表されている通り、オキシダントマニホールド孔25はオキシダント流れをカソード室（示されている通り分離板の上面に隣接している）のみに及びオキシダント流れをカソード室から提供するオキシダントマニホールドウエットシール46によってシールされる。このカソード室はオキシダント供給開口48及びオキシダント排出開口48'の近くにあり、このシール46はガスがアノード室又はアノード室から流れるのを回避している。一方、燃料マニホールド孔24は燃料マニホールドウエットシール45でシールされ、このシール45は燃料流れをアノード室（示される

通り分離板の下面に隣接する）のみに流し、及びアノード室から流し、このアノード室は燃料供給開口47及び燃料排出開口47'の近くにあり、このシール45はガス流れがカソード室又はカソード室から流れるのを回避している。マニホールドウエットシールはストレートプレスされたシート金属構造として示されるが、それらはガス流れを回避するためにあらゆる望ましい形又は構造をとることができる。このマニホールドウエットシールは燃料マニホールド孔24とオキシダントマニホールド孔25の間に二重のウエットシールを形成する。

【0038】分離板40は望ましい物理的強度及びガス分離を提供する適当な物質からなってもよい。この分離板は望ましくは非常に薄く、約0.010〜0.050インチの厚さであり、好ましくは、約0.015〜0.025インチの厚さである。多くの燃料電池スタックでは、バイメタル分離板を使用することが好ましく、第一鉄金腐食を避けるため、カソード面にステンレス鋼をアノード面にニッケル又は銅を使用できる。このニッケル又は銅は分離板の厚さの10%をクラッドし、積層し又はめっきである。分離板はタイプ300シリーズのステンレス鋼のような第一鉄合金から二次加工もまたできる。この分離板はガス室非反応性分離器を提供するのと内部負荷支持部材としての燃料電池への構造的強度を提供するのと二つの機能を提供する。電極に隣接してガスの好循環及び強度の両方をするために任意面積内の板形及び/又はえくぼを有する横断面形有する分離板を使用することが好ましいが、本発明の原理は、周囲のシール板を提供し、内部マニホールド孔の周りにシールを提供すると同時に燃料電池操作で要求されるようにガスを内部マニホールドへ通し、及び内部マニホールドからガスを通す構造の水平な分離板にもまた適用できる。

【0039】薄くスタンプされたスタンプ鋼板は、American Heat Reclaiming Corp. (1270 Avenue New York 100 20, NY) による刊行物 "Modern Designs For Effective Heat Transfer" 及び UTranster Inc. (Wichita Falls, Texas 76307) による "Superchanger Plate and Frame Heat Exchanger" で示される熱交換技術に利用されている。これらの熱交換器は一連のエンボスされたガセット又は板の一面上の熱媒体の通路用の溝を提供する末端フレーム及び板の他の面上の冷媒体の通路の間で一緒にボルト締めされたプレスされた金属板を使用する。しかしながら、燃料電池スタック分離板は非常に異なる問題、シーリング及び熔融アルカリ金属炭酸塩燃料電池操作条件下における腐食の問題、異なるマニホールド配置、シーリング及び流体連通手段の問題（二つの流体は分離した関係で隣接する分離板の間を通過しなければならぬ）を提供している。熱交換では、ひとつのみの流体が隣接する熱交換板の間を通過する。しかしながら、本発明のこの燃料電池スタックの電極を流れる流体流れの技

術はデザイン技術及び湯巻き模様、洗濯板、直線波形及び混合変形のような熱交換器の原型を有利に利用できる。

【0040】我々のセパレータプレートの両側における同方向の流れ及び対向方向の流れに関する先行出願においてより詳細に記述され且つ示されている本発明のセパレータプレートの実施態様に加えて、図4に本発明に有用な別のセパレータプレートが示されている。図4に示されているセパレータプレートには4つの同様な繰返し域が設けられており、商業的に実施可能な最大面積のセル、例えば  $10,000\text{ cm}^2$  すなわち約  $34 \times 57\text{ in}^2$  程度のセルとするときには望ましいガス流を提供できる。図4にはセパレータプレート240が示されている。このとき、燃料供給用のマニフォールド型孔224から燃料は矢印で示されているようにアノードチャンバーを通過し活性領域を横断して燃料の欠乏したマニフォールド型孔224Aに向かう。オキシダントはオキシダント供給用マニフォールド型孔225を通過してセパレータプレート240の反対側に供給され、そして、カソードチャンバーを通過しオキシダントの欠乏したマニフォールド型孔225Aに向かう。電解液と対応するアノード若しくはカソード及び/又はその集電装置との間でウエットシール246はマニフォールド型孔を封止しており、その結果として流体の漏れが防止される。同様にして、電解液と対応するアノード若しくはカソード及び/又はその集電装置との間でウエットシール223はセルの全周を封止している。図4では、本発明に係わる大規模な燃料電池のスタック用に適している集電装置の1つの形状が示されている。なお、その他の多くの形状も同様に適していることは理解されたい。

【0041】図3には、図2に示されたユニットセルを備えた燃料電池のスタックの実施態様の1つが示されている。ここでは、燃料電池の軸方向に沿って内部に分散させるのに適当なリフォーミングチャンバーが備えられている。リフォーミングチャンバーは、アノードセパレータ/リフォーマープレート40'とカソードセパレータ/リフォーマープレート40との間に設けられる。セパレータプレート40、カソード27、カソードコレクター28、電解液20、アノード26及びアノード集電装置29は図2に関して説明されたものと類似しているが、反応ガス用マニフォールド型孔50に関しては異なっている。反応ガスのマニフォールド型ウエットシール領域51は、セパレータプレート40の一般的な(general)平から両方の面上に伸びており接触して電解液20と隣接する電極との間でウエットシールを形成せしめ、反応ガス用のマニフォールド型孔の境界を定めている。オキシダント及び燃料用のマニフォールド型孔に関してはこのことは既述されている。反応ガス用マニフォールド型孔50の直径はセルのそれぞれの部品のものと同じであり、反応ガスのマニフォールド型ウエットシール領

域51の平らな面が一方の側で電解液20とカソード27及び/又はカソード集電装置28との間で接触をし、且つ、電解液20とアノード26及び/又はアノードコレクター29との間で接触をし、反応ガスのマニフォールドを囲うウエットシールを形成する。セパレータプレート中における伸びている反応ガス用マニフォールド型ウエットシール領域の側面は固体であり、それ故、反応ガスのアノードチャンバー又はカソードチャンバーへの流入が阻止される。アノードセパレータ/リフォーマープレート40'は、セパレータプレート40中にあるオキシダント供給開口48及びオキシダント欠乏開口48'とが含まれ、且つ、その結果として、アノードセパレータ/リフォーマープレート40'の上面に近接したリフォーマーチャンバーはいずれのオキシダントマニフォールドとも連通していないという点においてのみセパレータプレート40と異なる。伸びている反応ガスのマニフォールド型ウエットシール領域51の側面における反応ガス開口53は、反応ガスのマニフォールド50とリフォーマーチャンバーとを連通させる。同様にして、カソードセパレータ/リフォーマープレート40'の下側は、伸びている古い燃料用マニフォールド型ウエットシール領域45の固体側面を備えるように改変して、古い燃料マニフォールド24とリフォーマーチャンバーとの間をブロック連通させる。このとき、古い燃料用マニフォールド24は備えられていない。反応ガス供給用開口53は、反応ガスマニフォールド50とアノードセパレータ/リフォーマープレート40'とカソードセパレータ/リフォーマープレート40'との間に形成されているリフォーマーチャンバーとの間を連通させる。標準的なセパレータプレート40'にこれらの改変を加えて、完全に内部がマニフォールド型になっている反応ガス部及び流れ供給部を備えたリフォーミング反応チャンバーは、燃料電池のスタック内に望ましい間隔を置いて点在させてもよい。既に詳述したのと同様にして、セパレータ/リフォーマープレートを類似して組み立てて、対応する電極及び集電装置を備えたセパレータ/リフォーマープレートのサブアセンブリを形成してもよい。

【0042】燃料電池スタックが組み込まれた時、周囲のウエットシール領域とアノードセパレータ/リフォーマー板40'のすべてのウエットシール領域はカソードセパレータ/リフォーマー板40'から伸びる対応するウエットシール領域と接触し、強固な金属/金属シールを形成し、このシールはウエットシール領域での限られた柔軟性と弾性のために、マニフォールドを板40'と40'の間の空間により形成されるリフォーマー室から効果的にシールする。所望の場合には、リフォーマー室を形成する伸ばされたウエットシール領域をさらにセパレータ板40上まで伸ばし、セパレータ/リフォーマー板の間の空間をより大きくし、リフォーマー室の体積をより大きくすることができる。所望の場合にリフ

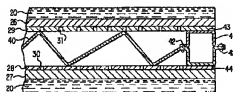


ル部分において電池を支える力を維持するために必要な継続管理のみが必要である。

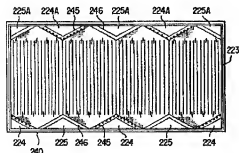
【0050】本発明の電池形状および電池スタックの利点を、主として溶融カーボネート電池質燃料電池に關して述べて来たが、これらは固体酸化物電解質における酸素イオン又は酸素空孔あるいはその双方の移動によって内部の電氣的条件を与える固体導電体／固体電解質燃料電池その他の高温燃料電池に容易に応用することができる。イットリウムでドーピングしたジルコニア、酸化物イオンを伝導する様々なパーブスカイト化合物、および固体陽子導電体（例えばイットルピウムでドーピングしたバリウム酸化物）等の、多くの適当な固体酸化物電解質が知られている。本発明の燃料電池スタック形状は、特にこれらのタイプの固体導電体／固体酸化物燃料電池において有用である。

【0051】前述の明細書において本発明を一定の好ましい具体例と関連して述べ、例証のために多くの詳細を述べて来たが、当業者には、本発明に従ってさらに具体例を追加できることが明らかだろう。

【図1】



【図4】



# 【図面の簡単な説明】

【図1】図1は、本発明の1実施態様に従う燃料電池の周辺のウェットシール領域の側断面図である。

【図2】図2は、本発明の1実施態様に従う燃料電池スタックの単一電池ユニットの分解斜視図である。

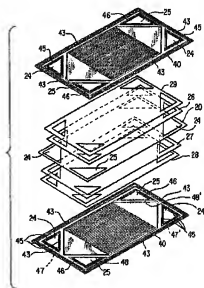
【図3】図3は、本発明の1実施態様に従う内部リフォーミング室をもつ燃料電池スタックの一部略分解斜視図である。

【図4】本発明に従うマニホールドを十分に設けた燃料電池スタックのマニホールドプレート別の別の実施態様の正面図である。

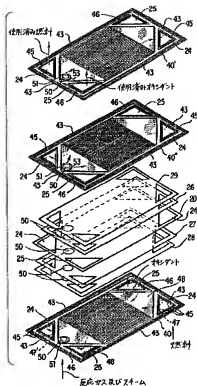
## 【符号の説明】

- 20 電解質
- 26 アノード
- 29 アノード集電体
- 40 セパレータプレート
- 30, 31 孔
- 28 カソード集電体
- 27 カソード

【図2】



【図 3】



【手続補正書】

【提出日】平成 4 年 1 0 月 2 日

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

【補正方法】変更

【補正内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 複数の燃料電池ユニットから成り；各燃料電池ユニットはアノード及びカソード、該アノードの電解質対向面と一方の面で接しかつ該カソードの電解質対向面と他方の面で接している電解質、並びにアノードとカソードとの間でそれら燃料電池ユニット同士を分離するセパレーター板にして、セパレーター板のアノード対向面と該アノードとの間にアノード室を形成すると共にセパレーター板の反対側のカソード対向面と隣接燃料電池ユニットの該カソードのセパレーター対向面との間にカソード室を形成する該セパレーター板を含んで成り；該アノード室は燃料ガス供給及び流出口と気体連通し、該カソード室はオキシダントガス供給及び流出口と気体連通している燃料電池スタックにおいて；該電解質及び該セパレーター板は該燃料電池スタックの周縁領域

まで延在しており；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、それらの各面において該電解質の約 1 インチ未満の幅と接するように延在する平らな周囲ウエットシール構造を有して電池の運転条件下で幅約 1 インチ未満の周囲ウエットシールを形成しており；該電解質及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電解質の約 1 インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウエットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約 1 インチ未満のマニホルドウエットシールを形成して、該電池スタックを貫いて延在する複数の気体マニホルド、該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一群の該マニホルドと該アノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二の該マニホルドの組と該カソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管を形成し、それによって該燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホルドシステムを与える；ことを改良点とする



前記燃料電池スタック。

【請求項2】 電池スタック端部板がそれらの内側面においてセパレーター板と同一の形状とされ、燃料電池スタックの各端部において半電池をなしている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項3】 燃料電池スタックにその軸に沿って、それぞれが2つのセパレーター／リホーマー板により形成された複数のリホーマー室が配置されており、該セパレーター／リホーマー板の一方はアノード室の1つに對面するセパレーター板のアノード對向面の形状を有し、そして該セパレーター／リホーマー板の他方はカソード室の1つに對面するセパレーター板のカソード對向面の形状を有し、該2つのセパレーター／リホーマー板はそれらの縁部において密封接合されてリホーマー室、延在マニホルドウエットシール構造を貫いて第3のマニホルドの組から該リホーマー室への反応ガス及びスチームの連通を与える導管、並びに延在マニホルドウエットシール構造を貫いて燃料ガス供給マニホルドへの水素富化生成ガスの連通を与える導管を包囲しており、それによって燃料電池スタックの各リホーマーユニットへの反応ガス及びスチームの、並びに各リホーマーユニットからの生成ガスの完全な内部マニホルドシステムを与える、請求項2に記載の燃料電池スタック。

【請求項4】 セパレーター板及びセパレーター／リホーマー板が約0.010〜約0.050インチ厚のプレス加工金属板である、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項5】 セパレーター板の一方の面上の平らな周囲ウエットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に延在周囲ウエットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在周囲ウエットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項6】 セパレーター板の一方の面上の延在マニホルドウエットシール構造が該セパレーター板のその一方の面上に該延在マニホルドウエットシールを形成するような該セパレーター板のプレス加工形状物から成り、該セパレーター板のその他方の面においては該セパレーター板のその他方の面に固定された延在マニホルドウエットシールを形成しているプレス加工板金形状物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項7】 リホーマー室が約5〜約10個の隣接燃料電池ユニットから成る群の間に配置されている、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項8】 セパレーター板が厚さ約0.010〜約0.050インチのプレス加工金属板である、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項9】 ウエットシールの幅が約1/4〜約3/

4インチである、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項10】 アノードに面する側のセパレーター板がニッケル及び銅から成る群より選択された金属で被覆又はクラッドされている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項11】 電解質が固体イオン導体／固体酸化化合物から成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項12】 電解質がアルカリ金属カーボネートから成る、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項13】 電解質がカーボンナノチューブ及びマドリックステープの形で燃料電池スタックに組み込まれている、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項14】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項1に記載の燃料電池スタック。

【請求項15】 アノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置されている、請求項14に記載の燃料電池スタック。

【請求項16】 集電装置が燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在している、請求項15に記載の燃料電池スタック。

【請求項17】 平らな周囲ウエットシール構造がセパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して、電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項18】 電解質、アノード、カソード、集電装置及びセパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らなマニホルドウエットシール構造により取り囲まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウエットシールを形成している、請求項16に記載の燃料電池スタック。

【請求項19】 アノード及びカソードが燃料電池スタックの周囲縁部領域まで延在し、該アノード及び該カソードの少なくとも一方とセパレーター板との間に集電装置が配置され、該集電装置は燃料電池スタックの該周囲縁部領域まで延在し、平らな周囲ウエットシール構造が該セパレーター板の周囲全体にわたって、該セパレーター板の各面において電極及び集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在して電池の運転条件下で幅約1インチ未満の周囲ウエットシールを形成しており、そして該電解質、該アノード、該カソード、該集電装置及び該セパレーター板が各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該セパレーター板の各面において該電極及び該集電装置の少なくとも一方の約1インチ未満の幅と接するように延在する平らな該マニホルドウエットシール構造により取り囲

まれて運転条件下で幅約1インチ未満のマニホルドウエットシールを形成している、請求項3に記載の燃料電池スタック。

【請求項20】 アノード、セパレーター板及びカソードを含んで成る燃料電池ユニット用のサブアセンブリーにして、

該燃料電池ユニットは燃料電池スタックの縁部領域まで延在する該アノード、該カソード及び該セパレーター板を有し；該セパレーター板はそれらの周囲全体にわたって、その各面から延在する幅約1インチ未満の平らな周囲ウエットシール構造を有し；該アノード、該カソード及び該セパレーター板は各々複数の整列した穿孔を有し、該セパレーター板の穿孔は、該穿孔、該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の一方の面上の一組のマニホルドとアノード室との間に燃料ガス連通を与える導管、及び該延在マニホルドウエットシール構造を貫通して該セパレーター板の他方の面上の第二のマニホルドの組とカソード室との間にオキシダントガス連通を与える導管の周囲全体にわたって該セパレーター板の各面から延在する幅約1インチ未満の平ら

なマニホルドウエットシール構造により取り囲まれており、それによって燃料電池スタック中の各ユニット燃料電池への及び各ユニット燃料電池からの燃料ガス及びオキシダントガスの完全な内部マニホルドシステムを与え、かつ該アノード、該セパレーター板及び該カソードを各々の密封領域において密封接合している；前記サブアセンブリー。

【請求項21】 密封接合が溶接である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項22】 セパレーター板及びウエットシール構造が該ウエットシール構造の平らな部分において約0.010～約0.050インチの厚さで、かつ約1/4～約3/4インチの幅である、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項23】 集電装置がアノード及びカソードの少なくとも一方とセパレーター板との間にある、請求項20に記載のサブアセンブリー。

【請求項24】 集電装置が燃料電池スタックの縁部領域まで延在している、請求項23に記載のサブアセンブリー。

---

フロントページの続き

(72)発明者 フランク・シー・ショウラ  
アメリカ合衆国イリノイ州60067, パラ  
イン, オールド・プラム・グループ・ロー  
ド 5500

(72)発明者 ランディー・ジェイ・ベトリ  
アメリカ合衆国インディアナ州46322, ハ  
イランド, イーダー・ストリート 3223  
(72)発明者 マーク・ジー・ロウソン  
アメリカ合衆国イリノイ州60402, パー  
ウイン, ケニルウォース・アベニュー 3644